

SILICON NITRIDE SUBSTRATE AND ITS MANUFACTURE

Patent Number: JP11236270
Publication date: 1999-08-31
Inventor(s): TANAKA KOICHI
Applicant(s):: KYOCERA CORP
Requested Patent: ☐ JP11236270
Application Number: JP19980043978 19980225
Priority Number(s):
IPC Classification: C04B35/584 ; C04B37/02 ; C04B41/88 ; H05K1/03
EC Classification:
Equivalents:

Abstract

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide the silicon nitride substrate to which a metallic member is joined through a metallized layer and the polishing of which is not required and which has high thermal conductivity and excellent mechanical properties and shows excellent durability in a thermal cycle test and also to provide the manufacture of the substrate.

SOLUTION: This substrate 1 consists of a silicon nitride sintered body which consists essentially of silicon nitride and also contains 2 to 10 mol.% (expressed in terms of oxide) of a group 3a element(s) of a Periodic Table, 2 to 20 mol.% (expressed in terms of SiO₂) of impurity oxygen and 0 to 0.5 mol.% (expressed in terms of oxide) of aluminum and has a thermal conductivity of ≥ 60 W/m.K. Also, a metallized layer 8 is deposited and formed on a sintered skin surface or oxide film surface of the substrate 1, so as to coat the surface. The sintered skin surface or oxide film surface of the substrate 1 is controlled so as to have a surface roughness (R_{max}) of 1 to 13 μ m and a fracture toughness of ≥ 6 MPa.m^{1/2}. Thus, the substrate 1 has excellent durability even when a metallic member 7 is joined to the surface of the metallized layer 8.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

25-66W0)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-236270

(43) 公開日 平成11年(1999) 8月31日

| | | | | |
|-------------------------------|-------|---------------|---------|--|
| (51) Int. Cl. ⁸ | 識別記号 | F I | | |
| C 0 4 B 35/584 | | C 0 4 B 35/58 | 1 0 2 C | |
| 37/02 | | 37/02 | B | |
| 41/88 | | 41/88 | Q | |
| H 0 5 K 1/03 | 6 3 0 | H 0 5 K 1/03 | 6 3 0 H | |
| | | | 6 3 0 G | |
| 審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 11 頁) | | | | |

(21) 出願番号 特願平10-43978

(22) 出願日 平成10年(1998) 2月25日

(71) 出願人 000006633

京セラ株式会社

京都府京都市伏見区竹田烏羽殿町 6 番地

(72) 発明者 田中 広一

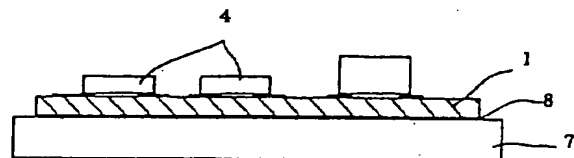
鹿児島県国分市山下町 1 番 4 号 京セラ株式会社総合研究所内

(54) 【発明の名称】 窒化ケイ素質基板及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】メタライズ層を介して金属部材が接合され、基板表面の研磨を不要とし、高熱伝導性と優れた機械的特性を有し、熱サイクル試験において優れた耐久性を具備し得る窒化ケイ素質基板とその製造方法を提供する。

【解決手段】窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3 a 族元素を酸化物換算で2~10モル%、不純物酸素をS i O₂、換算量で2~20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0~0.5重量%、熱伝導率60W/m・K以上の窒化ケイ素質焼結体からなる基板の焼き肌面または酸化膜面に対してメタライズ層が被着形成されてなり、前記焼き肌面または酸化膜面における表面粗さ(R_{max})を1~13μm、破壊靱性値を6MPa・m^{1/2}以上に制御し、前記メタライズ層の表面に金属部材が接合された場合においても優れた耐久性を具備する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素を酸化物換算で2～10モル%、不純物酸素をSiO₂換算量で2～20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0～0.5重量%、熱伝導率60W/m・K以上の窒化ケイ素質焼結体からなる基板の焼き肌面に対してメタライズ層が被着形成されてなり、前記焼き肌面における表面粗さ(R_{max})が1～13μmであり、且つ破壊靱性値が6MPa・m^{1/2}以上であることを特徴とする窒化ケイ素質基板。

【請求項2】前記メタライズ層の表面に金属部材が接合されてなる請求項1記載の窒化ケイ素質基板。

【請求項3】前記周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比が2以下である請求項1記載の窒化ケイ素質基板。

【請求項4】窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素化合物を酸化物換算で2～10モル%、不純物酸素をSiO₂換算で2～20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0～0.5重量%の成形体を作製する成形工程と、該成形体を窒素ガスを含む非酸化性雰囲気中で1400～1800℃で焼成する第1の焼成工程と、第1の焼成工程に引き続いて、1.5気圧以上の窒素ガスとSiO₂ガスを含む非酸化性雰囲気中で1800～1980℃の温度で焼成する第2の焼成工程と、焼成後の基板の焼き肌面にメタライズ層を被着形成するメタライズ工程と、を具備することを特徴とする窒化ケイ素質基板の製造方法。

【請求項5】前記メタライズ層の表面に金属部材を接合する工程を具備する請求項4記載の窒化ケイ素質基板の製造方法。

【請求項6】前記成形体における前記周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比が2以下である請求項4記載の窒化ケイ素質基板の製造方法。

【請求項7】窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素化合物を酸化物換算で2～10モル%、不純物酸素をSiO₂換算で2～20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0～0.5重量%の成形体を作製する成形工程と、該成形体を窒素ガスを含む非酸化性雰囲気中で1400～1800℃で焼成する第1の焼成工程と、第1の焼成工程に引き続いて、1.5気圧以上の窒素ガスを含む非酸化性雰囲気中で1800～1980℃の温度で焼成する第2の焼成工程と、SiO₂ガスを含む雰囲気中、1000～1800℃で熱処理する工程と、熱処理後の基板の焼き肌面にメタライズ層を被着形成するメタライズ工程と、を具備することを特徴とする窒化ケイ素質基板の製造方法。

【請求項8】前記メタライズ層の表面に金属部材を接合

する工程を具備する請求項7記載の窒化ケイ素質基板の製造方法。

【請求項9】前記成形体における前記周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比が2以下である請求項7記載の窒化ケイ素質基板の製造方法。

【請求項10】窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素を酸化物換算で2～10モル%、不純物酸素をSiO₂換算量で2～20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0～0.5重量%、熱伝導率60W/m・K以上の窒化ケイ素質焼結体からなる基板の表面に酸化膜を介して金属メタライズ層が被着形成されてなり、前記酸化膜表面における表面粗さ(R_{max})が1～13μm、酸化膜面における破壊靱性値が6MPa・m^{1/2}以上であることを特徴とする窒化ケイ素質基板。

【請求項11】窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素を酸化物換算で2～10モル%、不純物酸素をSiO₂換算量で2～20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0～0.5重量%、前記周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比が2以下の窒化ケイ素質基板を、酸化性雰囲気中、700～1000℃で酸化処理する工程と、該酸化処理後の表面にメタライズ層を被着形成する工程と、を具備することを特徴とする窒化ケイ素質基板の製造方法。

【請求項12】前記メタライズ層の表面に金属部材を接合する工程を具備する請求項11記載の窒化ケイ素質基板の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、窒化ケイ素を主体とする焼結体からなり、その表面に半導体素子やコンデンサ、抵抗素子などの電子部品が搭載される窒化ケイ素質基板とその製造方法に関わるものであり、詳細には基板表面にメタライズ層を介して金属箔やヒートシンク材等の金属部材が接合される窒化ケイ素質基板の改良に関するものである。

【0002】

【従来技術】従来より窒化ケイ素材料は、室温から高温までの強度特性、耐摩耗性、高破壊靱性、高硬度等の優れた機械的特性に加え、低熱膨張性、耐熱衝撃性に優れかつ軽量であることから、これまでにさまざまな用途、たとえば自動車エンジン、ガスタービン等高温構造部品、ベアリング、粉砕機、定盤、ガイド、切削工具等耐摩耗部品、さらには熔融金属に対する耐食性から金属溶湯部品等に展開されている。

【0003】従来、半導体用のパッケージや回路基板に

10

20

30

40

50

において、近年の急速な半導体素子の高密度化、高性能化による高温化に伴い、それらに用いられる材料としても高熱伝導化が望まれている。これまで高熱伝導性セラミックス材料としては、従来より窒化アルミニウム、炭化ケイ素、酸化ベリリウム等が知られており、特に、半導体パッケージや電子部品などの放熱用部材としては窒化アルミニウム焼結体が最も用いられている。

【0004】ところで、パッケージや回路基板の使用環境の拡大により、耐振動、耐衝撃、耐熱サイクル疲労等の特性が要求されるようになってきている。そこで、絶縁基板として窒化ケイ素焼結体を採用することが種々提案されている。

【0005】例えば、特開平4-125950号や特開平4-125952号では、所定間隔内の窒化ケイ素結晶粒子数を制御して高熱伝導性の窒化ケイ素基板が提案され、さらに、特開平7-149588号では、希土類元素酸化物およびAl, O₂を含有した高熱伝導、高強度の窒化ケイ素質焼結体をメタライズ基板として用いることが提案されている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、従来の窒化ケイ素材料からなる基板材料では、高熱伝導性や高強度化についてはある程度高く、放熱性などの点では有用性を有するものであるが、自動車用として搭載される基板のように、過酷な使用条件下で基板に対して熱サイクルが付与されると、その表面に形成されたメタライズ配線層との間との熱膨張差に起因する熱応力が繰り返し付与されるという問題があった。特にこの熱応力は、窒化ケイ素基板に対して、金属部材が接合された構造体においては、その応力は特に大きく、その結果、この熱応力によって窒化ケイ素基板にクラックが発生してしまうという致命的な問題があった。

【0007】また、従来の窒化ケイ素質基板では、焼き肌面の強度が低いために、焼成後の基板表面にメタライズ層を形成する前に、基板表面を研磨処理する必要があり、その結果、基板の製造コストが高くなるという問題があった。しかも、従来の焼き肌面にメタライズ層を介して金属部材を接合しても、上記と同様に熱サイクルによってクラックが発生するという問題があった。

【0008】従って、本発明は、メタライズ層が被着形成される基板、特にそのメタライズ層の表面に金属部材が接合される基板において、基板表面の研磨を不要とし、高熱伝導性と高い機械的特性を有するとともに、熱サイクル試験において優れた耐久性を具備し得る窒化ケイ素質基板とその製造方法を提供することを目的とするものである。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記の課題に対し検討を重ねた結果、熱サイクル試験における信頼性、耐久性を高めるとともにコストの低減には、焼き肌

面の表面粗さを所定の範囲に制御するとともに、その焼き肌面の靱性を高めることが有効であること、また、焼結助剤として周期律表第3a族酸化物を特定範囲で含む窒化ケイ素質焼結体において、アルミニウムの量を低減することにより、熱伝導率および強度を高めると同時に、靱性をも高めることができる結果、熱サイクル下においても優れた耐久性を付与できることを見だし、本発明に至った。

【0010】即ち、本発明の窒化ケイ素質基板は、窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素を酸化物換算で2~10モル%、不純物酸素をSiO₂、換算量で2~20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0~0.5重量%、熱伝導率60W/m・K以上の窒化ケイ素質焼結体からなる基板の焼き肌面に対してメタライズ層が被着形成されるものであり、かかる基板の焼き肌面における表面粗さ(R_{max})を1~13μmとし、且つ焼き肌面における破壊靱性値を6MPa・m^{1/2}以上とすることを特徴とするものである。

【0011】また、上記基板は、さらにメタライズ層の表面に金属部材が接合される場合に好適に使用されるものである。

【0012】なお、上記窒化ケイ素質基板によれば、さらに、前記周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂、換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比が2以下であることが望ましい。

【0013】本発明によれば、上記窒化ケイ素質基板は、窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素化合物を酸化物換算で2~10モル%、不純物酸素をSiO₂、換算で2~20モル%の割合で含み、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0~0.5重量%の混合粉末を基板形状に成形する工程と、該成形体を窒素を含む非酸化性雰囲気中で1400~1800℃で焼成する第1焼成工程と、該第1焼成工程に引き続き、1.5気圧以上の窒素ガスと、SiO₂ガスを含む非酸化性雰囲気中で1800~1980℃の温度で焼成する第2焼成工程と、焼成後の基板の焼き肌面にメタライズ層を被着形成するメタライズ工程と、を経ることにより製造することができ、特に、前記メタライズ層の表面に金属部材を接合する工程を具備することが望ましい。

【0014】また、上記製造方法によれば、前記成形体における前記周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂、換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比が2以下であることが望ましい。さらに、上記製造方法においては、前記メタライズ工程前の窒化ケイ素質基板をSiO₂ガスを含む非酸化性雰囲気中、1000~1800℃で熱処理する工程を具備することが望ましい。

【0015】本発明の他の第2の発明によれば、窒化ケ

イ素を主成分とし、周期律表第3a族元素を酸化物換算で2~10モル%、不純物酸素をSiO₂、換算量で2~20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0~0.5重量%、熱伝導率60W/m・K以上の窒化ケイ素質焼結体からなる基板の表面に酸化膜を介して金属メタライズ層が被着形成されるものであって、前記酸化膜表面における表面粗さ(R_{max})を1~13μm、且つ破壊靱性値を7MPa・m^{1/2}以上とすることによっても前記目的が達成される。

【0016】なお、かかる基板は、窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素を酸化物換算で2~10モル%、不純物酸素をSiO₂、換算量で2~20モル%の割合で含有し、アルミニウムの酸化物換算による含有量が0~0.5重量%、前記周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂、換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比が2以下の窒化ケイ素質基板を、酸化性雰囲気中、700~1000℃で酸化処理する工程と、該酸化処理後の表面にメタライズ層を被着形成する工程を経て製造されるものであり、また、前記メタライズ層の表面に金属部材を接合する工程を具備することが望ましい。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明の窒化ケイ素質基板は、組織上、窒化ケイ素結晶を主体とし、その結晶粒界に少なくとも周期律表第3a族元素を含む粒界相を具備する窒化ケイ素質焼結体から構成される。そして、窒化ケイ素結晶は、平均粒径が2μm以上、特に3μm以上、平均アスペクト比が1.5以下、特に1.2以下の形状からなる。これは結晶粒と結晶粒の界面が多く存在するほどフォノン拡散が大きくなり熱伝達の効率が低下するため、結晶粒を大きくすることにより、粒界相によるフォノンの散乱が低減される結果、焼結体の熱伝導性を向上させることができる。また、それと同時に、窒化ケイ素結晶の粒径を上記の範囲を満足するように大きくすることにより、焼結体内のクラックの進展を粗大粒子が阻止する作用をなす結果、焼結体の靱性を向上する効果も奏する。

【0018】従って、窒化ケイ素結晶の平均粒径が2μmよりも小さいと、熱伝導率および破壊靱性が低下し、平均アスペクト比が1.5を越えると強度が劣化する傾向にある。

【0019】この焼結体の粒界に存在する周期律表第3a族元素は、酸化物換算で全量中、2~10モル%、特に2.5~5モル%の割合で含有される。周期律表第3a族元素としては、Y、Sc、Sm、Gd、Nd、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu等が挙げられるが、これらの中でもDy、Ho、Er、Tm、Yb、Luの重希土類元素が強度および熱伝導性を高める上で望ましい。なおこの周期律表第3a族元素の量を上記の量に限定したのは、2モル%より少ないと緻密化不足となり、

熱伝導性、機械的特性が劣化する。また10モル%より多いと粒界相量が多くなり熱伝導率が低下するためである。

【0020】さらに、本発明における焼結体中には、不純物酸素をSiO₂、換算量で2~20モル%の割合で含有する。この不純物酸素量は、焼結体中の全酸素量から、周期律表第3a族元素に対して化学量論組成で結合している酸素量を差し引いた残りの酸素量であり、そのほとんどは窒化ケイ素原料中の不可避不純物酸素、あるいは意図的に添加されたSiO₂によるものである。上記不純物酸素量を限定したのは、2モル%よりも小さいと緻密化不足となり、20モル%を超えると、粒界相が多くなり熱伝導率が低下するためである。

【0021】上記焼結体の粒界相中には、周期律表第3a族元素(以下、REと記載する場合がある。)、ケイ素、酸素及び窒素を構成元素として含む結晶相を含むことが望ましい。具体的な結晶相としては、RE, Si, O₂、RE, SiO₂、のRE, O₂-SiO₂系結晶、RE, Si, N₂ O₂、RE, Si, N₂ O₂、RE, Si, N, O₂、RE, Si, N₂ O₂、などのSi, N、-RE, O₂-SiO₂系結晶等が挙げられる。このように粒界相を結晶化することにより、熱伝導率を向上させることができる。

【0022】これらの中でも特に、粒界結晶相としては、破壊靱性を高める上で、RE, Si, N₂ O₂、RE, Si, N₂ O₂、RE, Si, N₂ O₂、の群から選ばれた少なくとも1種からなることが望ましい。このような粒界結晶相を積極的に析出させるためには、焼結体中における周期律表第3a族元素の酸化物換算量(RE, O₂)と、不純物酸素のSiO₂、換算量とのSiO₂/RE, O₂で表されるモル比を2以下となるように組成制御することが望ましい。

【0023】また、この焼結体中のアルミニウム含有量が酸化物換算で0~0.5重量%であることも重要である。これは焼結体中にアルミニウムが存在する場合、アルミニウムは、酸化物、窒化物として窒化ケイ素結晶中に固溶しサイアロン結晶中(SiAlON)を形成するが、このサイアロンはイオン結合性が強く、窒化ケイ素結晶自体の熱伝導率を低下させる結果、焼結体の熱伝導性を劣化させる。しかもアルミニウムの存在は粒界相の結晶化を阻害する要因となる。このような理由からアルミニウム含有量は極力少ない方が好ましく、酸化物換算量で0~0.1重量%、特に0~0.08重量%が望ましい。

【0024】本発明の窒化ケイ素質基板における第1の態様によれば、その少なくとも一部の表面に焼き肌面を有し、その焼き肌面に対して直接メタライズ層が被着形成される。そして、本発明によれば、その焼き肌面の表面粗さR_{max}を1~13μm、特に1~7μmとすることが重要である。これは、上記表面粗さが1μmより

RE
O
Si
N

小さいと、メタライズ層と基板との接着強度が十分でなく、その結果、メタライズ層を介して金属部材を接合した場合に、金属部材との接合強度が弱くなり信頼性が低下するためである。また、表面粗さが $13\mu\text{m}$ よりも大きいと焼き肌面の強度が劣化し、金属部材と接合した時に熱サイクルによって発生する応力によって基板にクラックが発生しやすくなるためである。

【0025】また、上記表面粗さに加え、メタライズ層が被着形成される焼き肌面の破壊靱性値が、 $6\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 以上、特に $7\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 以上、さらには $8\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 以上であることが重要である。これは、メタライズ層に対して金属部材を接合した場合において、過酷な条件下での熱サイクルによりメタライズ層や金属部材との熱膨張差に起因して発生した応力によって、発生する微小クラックの進展を有効に防止することができる結果、基板としての性能に影響を及ぼすことがなく、耐久性を有する高信頼性の基板となるためである。従って、破壊靱性値が $6\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ よりも低いと、微小クラックの進展を抑制することができず、大きなクラックの発生によって基板としての耐久性が劣化するためである。

【0026】また、本発明の窒化ケイ素質基板の第2の態様によれば、窒化ケイ素質基板の表面に酸化膜が形成されており、さらにその酸化膜の表面に金属メタライズ層が被着形成されるものである。そして、本発明によれば、上記酸化膜表面の表面粗さ(R_{max})が $1\sim 13\mu\text{m}$ であり、酸化膜面における破壊靱性値が $6\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 以上、特に $7\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 以上、さらには、 $8\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 以上の基板を用いることによって第1の態様と同様の効果を達成できる。この表面粗さ及び破壊靱性値を限定した理由は、第1の態様における理由と同一である。

【0027】そして、この第2の態様によれば、メタライズ層形成面において、後述する製造方法に記載されるような酸化処理によって酸化膜を形成すると、形成された酸化膜に対して圧縮応力が作用する結果、酸化膜面における破壊靱性値をさらに高めることができる。

【0028】なお、上記第1および第2の態様において、破壊靱性値は、JIS R1607に基づき、焼き肌面あるいは酸化膜面にダイヤモンド圧痕を所定圧力で形成した時の圧痕周囲のクラック長さを測定し、その長さに基づきJIS規格による計算式で算出されるものである。

【0029】また、本発明の第1および第2の態様に基づく窒化ケイ素質基板は、基板の基本的性質として、その焼き肌面あるいは酸化膜面を引張面とするJIS R1601に基づく抗折試験による4点曲げ抗折強度が 500MPa 以上、特に 600MPa 以上であることが望ましい。これは、抗折強度が 500MPa よりも低いと、メタライズ層や金属部材を接合した構造において、熱サ

イクルによって発生した応力に基板自体が耐えられなくなりクラックの進展を助長するためである。

【0030】次に、本発明における窒化ケイ素質基板を製造するための方法について説明する。まず、窒化ケイ素を主成分とし、周期律表第3a族元素化合物を酸化物換算で $2\sim 10$ モル%、特に $2.5\sim 5$ モル%、不純物酸素を SiO_2 換算で $2\sim 20$ モル%、特に $2.5\sim 10$ モル%の割合で含み、アルミニウムの酸化物換算による含有量が $0\sim 0.5$ 重量%の組成からなる成形体を作製する。

【0031】かかる成形体の作製にあたり、第1の方法としては、先ず、窒化ケイ素粉末に対して、前記周期律表第3a族の化合物、特に酸化物、場合によっては SiO_2 粉末を添加する。この時、用いる窒化ケイ素粉末は、直接窒化法でもイミド分解法のいずれの方法によって作製されたものであっても問題なく、また、 α 型、 β 型のいずれでもよいが、焼結性及び破壊靱性を考慮すれば、 α 型を主体とすることが望ましい。

【0032】また、前記成形体を作製する第2の方法として、上記の窒化ケイ素原料のかわりに、その一部あるいは全部をケイ素粉末に置き換え、これに周期律表第3a族元素化合物や SiO_2 粉末等を添加混合する。

【0033】かかる方法では、ケイ素が窒素中で処理して窒化されると、 β 型の窒化ケイ素に転換される。このようにして生成した窒化ケイ素は、粒成長の核となり、窒化ケイ素結晶が粗大した組織となり高熱伝導性を示す。またケイ素を窒化処理して窒化ケイ素を生成する際、体積変化を伴わず重量増加し、高密度の成形体を作製できるために、焼成時の収縮を小さくする効果もある。この場合、ケイ素量は配合される全窒化ケイ素分のうちの少なくとも 5 重量%、好ましくは 10 重量%以上、さらには $20\sim 70$ 重量%に相当する量の窒化ケイ素を生成する量で配合されることが望ましい。

【0034】次に、上記のようにして原料成分を上記の比率で配合したものを振動ミル、バレルミル、回転ミルなどにより十分に混合した後、その混合物を金型プレス、冷間静水圧プレス、排泥成形、鋳込み成形、ロールコンパクション法、ドクターブレード法などの成形手段により所望のシート状に成形する。

【0035】そして、成形体中にケイ素を含む場合には、焼成前に、 $800\sim 1500^\circ\text{C}$ の窒素含有雰囲気中で熱処理して前記ケイ素を窒化して窒化体を作製する工程が必要である。この窒化工程は、そのみを単独の工程で行なっても後述する焼成工程と連続で行なってもかまわない。

【0036】焼成は、窒素を含む非酸化性雰囲気で行われるが、本発明では、まず、成形体または窒化体を第1焼成工程として、該成形体を窒素ガスを含む非酸化性雰囲気中で、特に常圧下の $1400\sim 1800^\circ\text{C}$ で焼成した後、第1焼成工程に引き続き、 1.5 気圧以上の窒素

ガスを含む非酸化性雰囲気中で1800~1980℃の温度で焼成する。

【0037】上記の第1焼成工程により、高圧の窒素ガス圧が印加可能な相対密度90%以上までに緻密化する。この時の密度が低いと第2焼成工程で高圧ガスを印加した場合、高圧ガスが基板内部の空孔内にトラップされるため、緻密化し難くなる。

【0038】第1の焼成工程で、高温で焼成するとともに窒化ケイ素が分解しないように高圧の窒素ガスを印加しながら焼成して、相対密度97%以上の焼結体を得る。

【0039】従って、焼成工程を第1焼成工程なしに焼成すると、内部の空孔内に高圧ガスがトラップされる結果、緻密化が十分に行われず、基板の熱伝導率の低下、機械的特性の低下を招いてしまう。

【0040】なお、上記の焼成後の冷却過程で1000℃までを200℃/hr以下の降温速度で徐冷するか、または得られた焼結体を1000~1800℃の窒素含有非酸化性雰囲気中で熱処理することにより粒界相の結晶化を促進し、特性の更なる改善を行なうことができる。

【0041】また、本発明の第1および第2の態様における窒化ケイ素質基板においては、焼き肌面における表面粗さ R_{max} を1~13μmに制御すると同時に破壊靱性値を6MPa・m^{1/2}以上とすることが必要である。

【0042】第1の態様における窒化ケイ素質基板において、表面粗さおよび破壊靱性値を上記のように制御するには、(a)前記第2の焼成工程を窒素ガスに加え、SiO₂ガス含有雰囲気で行う、(b)前記第2の焼成工程後に、SiO₂ガス含有の非酸化性雰囲気中で、1000~1800℃、望ましくは1300~1750℃の温度で熱処理する、の(a)(b)のいずれの方法によっても制御できる。なお、SiO₂ガスは、第1の焼成工程時に含まれていてもよい。

【0043】このSiO₂ガスは、成形体の周囲に、Si/SiO₂混合粉末、SiO₂/Si、N₂混合粉末を配置することにより、焼成時にこの混合粉末が分解してSiO₂ガスを発生する。SiO₂ガスの濃度は、上記混合粉末の量によって制御できるが、好適には、成形体重量の1~30%相当量の混合粉末を配置することが望ましい。上記のようにSiO₂ガス雰囲気中で焼成、あるいは熱処理を施すことにより、SiO₂成分の減少を抑制することができる結果、焼き肌面の表面粗さを小さくすることができるとともに破壊靱性を高めることができる。

【0044】また、第2の態様における窒化ケイ素質基板において、表面粗さおよび破壊靱性値を上記のように制御するには、例えば、成形体または窒化体を窒素ガスを含む非酸化性雰囲気中1400~1800℃で焼成した後、1.5気圧以上の窒素ガスを含む非酸化性雰囲気中

で1800~1980℃の温度で焼成して作製して作製され、周期律表第3a族元素の酸化物換算量(R_E, O₂)と、不純物酸素のSiO₂換算量とのSiO₂/R_E, O₂で表されるモル比が2以下の窒化ケイ素質基板を、酸化性雰囲気中、700~1000℃、特に800~950℃の温度で100時間以下の酸化処理を施すことによって形成することができる。この酸化処理によれば、焼き肌面をヒーリング、即ち、焼き肌面の凹凸を緩和するとともに、酸化膜によって圧縮応力を発生させる結果、酸化膜面の表面平滑性と破壊靱性を向上させることができる。

【0045】次に、上記のようにして、焼き肌面あるいは酸化膜面が所定の表面粗さ、高靱性化された窒化ケイ素質基板に対して、メタライズ層を形成する。このメタライズ層としては、Cu、Ag、Al、W、Mo、MnおよびTiから選ばれる少なくとも1種以上の金属からなる。これらのメタライズ層は、基板表面に上記金属の粉末を含む導体ペーストを印刷塗布した後、所定の焼き付け温度で熱処理することにより形成することができる。

【0046】例えば、Cu、Al、Ag、Ag-Ti、Ag-Ti-Cu系では、900~950℃の窒素雰囲気中、W、Mo、Mo-Mn系では1400~1600℃の水素窒素混合雰囲気中で熱処理される。形成されるメタライズ層の厚さは、その用途にもよるが、5~30μmが適当である。

【0047】上記のようにして形成されたメタライズ層の表面には、金属箔や金属製放熱体(ヒートシンク)などの金属部材が接合されることが望ましく、さらに、その金属箔の表面に半導体素子、コンデンサ、抵抗素子などの電子部品が搭載されてもよい。

【0048】例えば、図1に示すように、窒化ケイ素質基板1の表面には、接合用メタライズ層2を介して、または直接、金属箔3が接合されており、その金属箔3の表面には半導体素子などの電子部品4が搭載される。なお、この図1では、窒化ケイ素質基板1は、他のアルミナ、AlN、ムライトなどのセラミックスを絶縁基板としてその表面および内部に配線層が形成された回路基板5とメタライズ等の接合剤6を介して接合されている。

【0049】また、他の構造としては、図2に示すように、一方の表面に上記のようにして種々の電子部品が実装された窒化ケイ素質基板1の反対面に、銅、アルミニウム、銅-タングステン、ニッケルなどの金属材料からなる放熱体7と接合用メタライズ層8を介して接合された構造を有する。

【0050】また、場合によっては、上記の窒化ケイ素質基板の表面には、搭載する電子部品と電氣的に接続される配線層用としてのメタライズ層が形成されていてもよい。この配線層は、基板表面に厚膜法によって、前述したような導体ペースト等を印刷塗布して焼き付け処理

して形成すればよい。

【0051】上記のような金属箔やヒートシンクが接合された基板を過酷な使用条件、例えば、 $-50 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の熱サイクルが印加された場合、窒化ケイ素質基板の熱膨張係数は $2 \sim 3 \text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 程度であるのに対して、金属箔や金属製ヒートシンクなどの金属部材の熱膨張係数は $5 \text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 以上であり、特に高熱伝導性が要求される場合に、使用される銅やアルミニウム単味の場合には、 $15 \text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ 以上と非常に大きい。従って、このような金属部材が接合された基板に対して、基板表面に搭載された電子部品からの発熱や、高温環境下での使用により高温状態に保持されると、これらの熱膨張差により大きな熱応力が発生する。そして、この熱応力が繰り返して印加されると、次第に熱疲労によって基板が変形またはクラックなどが生じることになる。

【0052】本発明によれば、このような熱応力の繰り返して印加による熱疲労に対して基板におけるメタライズ層形成面の焼き肌面あるいは酸化膜面の表面粗さが $1 \sim 13 \mu\text{m}$ 、破壊靱性が $6 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ 以上とすることにより、過酷な使用条件下で熱サイクルが印加された場合においても、メタライズ層および金属部材と強固に接合し得る耐久性を具備することができる。

【0053】

【実施例】直接窒化法により作製された窒化ケイ素粉末（β率5%、酸素量1.0重量%、平均粒径 $0.5 \mu\text{m}$ ）、ケイ素粉末（純度95%）、各種周期律表第3a族元素酸化物粉末、所望により酸化ケイ素粉末を添加した後、窒化ケイ素製ボールとメタノールと有機バインダーを入れ、振動ミルにて混合粉碎し、その後ドクターブレード法にてテープ状の成形体を得た。成形体の組成を

表1～表3に示す。

【0054】次に、この成形体を乾燥後、大気中 300°C で3時間保持して脱脂し、表1～表3に示す第1焼成条件、第2焼成条件にて焼成した。なお、出発原料中にケイ素粉末を含むものについては、脱脂後、窒素中で 1300°C で3時間窒化処理したものを表1～表3の焼成条件で焼成した。

【0055】また、第2焼成工程で、雰囲気中にSiO

ガスを導入した試料は、いずれも成形体重量に対して、10%相当量のSi/SiO₂（1:1重量比）の混合粉末を成形体周囲に配置したものである。

【0056】また、表中、試料No.41～43、47の焼結体に対しては、上記の焼成後に、SiO₂ガスを含む窒素含有雰囲気中で表1～表3の温度で1時間熱処理した。

【0057】なお、この時のSiO₂ガスの発生は、前記第2の焼成と同様にして行った。さらに、試料No.44～47の焼結体に対しては、大気中で表1～表3に示す温度で酸化処理を施し、基板表面に約 $0.5 \sim 30 \mu\text{m}$ のSiO₂膜を形成した。

【0058】得られた各焼結体に対して、その焼き肌面および酸化膜面の表面粗さ R_{max} を測定するとともに、アルキメデス法による密度測定を行ない、調合時の理論密度との相対密度を算出した。基板の焼き肌面および酸化膜面に対してJIS R1607に基づくIM法により破壊靱性値を測定した。また、焼結体から抗折試験片を切断加工し、常温にてJIS R1601に基づき焼き肌面あるいは酸化膜面を引張面として、4点曲げ抗折強度試験を行ない、その結果を表4～表6に示した。

【0059】また、試料を粉碎し、X線回折測定により窒化ケイ素以外の結晶相を同定した。熱伝導率は直径 10 mm 、厚さ 2 mm の形状に加工し、レーザーフラッシュ法にて測定した。

【0060】次に、上記の窒化ケイ素質基板の表面に、平均粒径が $2 \mu\text{m}$ の銅粉末を含有する導体ペーストを印刷塗布した後、窒素雰囲気中で 950°C で焼き付け処理し、厚さ $10 \mu\text{m}$ の銅からなるメタライズ層を形成した。その後、そのメタライズ層表面に厚さ $0.2 \mu\text{m}$ の銅箔を接合した。この接合物を -50°C と 150°C の恒温槽にてそれぞれ30分間ずつ保持して、これを最高3000サイクル行い、銅箔を接合した部分の基板表面を100サイクル毎に検査してクラックが発生するまでのサイクル数を調べた。その結果を表4～表6に示した。

【0061】

【表1】

| 試料 No. | 成形体組成 (モル%) | | | | | | SiO ₂ RE ₂ O ₃ | Al ₂ O ₃ (重量%) | 焼成温度 (°C) | | 雰囲気 | SiO ₂ 熱処理 (°C) | 酸化処理 温度 時間 (°C) (hr) |
|-----------|--------------------------------|----|--------------------------------|----|------------------|------|--|---|--------------|------|---------------------|---------------------------------|----------------------------|
| | Si ₃ N ₄ | Si | RE ₂ O ₃ | | SiO ₂ | | | | 第1 | 第2 | | | |
| 1 | 97.5 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 1 | — | 1.5 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 2 | 95 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 2 | — | 3 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 3 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 4 | 82.5 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 7 | — | 10.5 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 5 | 75 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 10 | — | 15 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 6 | 62.5 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 15 | — | 22.5 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 7 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.3 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 8 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.5 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 9 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 1.0 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 10 | 92 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 4 | 1.0 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 11 | 88 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 8 | 2.0 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 12 | 84 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 12 | 3.0 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 13 | 76 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 20 | 5.0 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 14 | 90 | 0 | Y ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 15 | 90 | 0 | Sc ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 16 | 90 | 0 | Sm ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 17 | 90 | 0 | Gd ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 18 | 90 | 0 | Nd ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 19 | 90 | 0 | Dy ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 20 | 90 | 0 | Ho ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 21 | 90 | 0 | Er ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 22 | 90 | 0 | Tm ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 23 | 90 | 0 | Lu ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |

*印は本発明の範囲外の試料を示す。

[0062]

* * [表2]

| 試料 No. | 成形体組成 (モル%) | | | | | | SiO ₂ RE ₂ O ₃ | Al ₂ O ₃ (重量%) | 焼成温度 (°C) | | 雰囲気 | SiO ₂ 熱処理 (°C) | 酸化処理 温度 時間 (°C) (hr) |
|-----------|--------------------------------|----|--------------------------------|---|----------------------------------|---|--|---|--------------|------|---------------------|---------------------------------|----------------------------|
| | Si ₃ N ₄ | Si | RE ₂ O ₃ | | SiO ₂ | | | | 第1 | 第2 | | | |
| 24 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 2 | Lu ₂ O ₃ 2 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 25 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 2 | Er ₂ O ₃ 2 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 26 | 90 | 0 | Er ₂ O ₃ | 2 | Lu ₂ O ₃ 2 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 27 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 2 | Y ₂ O ₃ 2 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 28 | 90 | 0 | Y ₂ O ₃ | 2 | Lu ₂ O ₃ 2 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 29 | 70 | 20 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 30 | 40 | 50 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 31 | 20 | 70 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 32 | 4 | 86 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 33 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1300 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 34 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1400 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 35 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1500 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 36 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1650 | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 37 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1950 | N ₂ +SiO | — | — |
| 38 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1600 | 1750 | N ₂ +SiO | — | — |
| 39 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | — | 1850 | N ₂ +SiO | — | — |
| 40 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | — | N ₂ +SiO | — | — |
| 41 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | 1300 | — |
| 42 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | 1500 | — |
| 43 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | — | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | 1600 | — |

*印は本発明の範囲外の試料を示す。

[0063]

[表3]

| 試料 No. | 成形体組成 (モル%) | | | | | SiO ₂ RE ₂ O ₃ | Al ₂ O ₃ (重量%) | 焼成温度 (°C) | | | SiO ₂ 熱処理 (°C) | 酸化処理 温度 時間 (°C) (hr) |
|-----------|--------------------------------|----|--------------------------------|---|------------------|--|---|--------------|------|----------------|---------------------------------|----------------------------|
| | Si ₃ N ₄ | Si | RE ₂ O ₃ | | SiO ₂ | | | 第1 | 第2 | 雰囲気 | | |
| 44 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | — | 800×10 |
| 45 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | — | 900×10 |
| 46 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | — | 800×72 |
| 47 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | 1600 | 900×10 |
| * 48 | 90 | 0 | Y ₂ O ₃ | 4 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | — | — |
| * 49 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | — | — |
| * 50 | 90 | 0 | Yb ₂ O ₃ | 4 | 6 | 1.5 | 0.1 | 1750 | 1850 | N ₂ | — | — |

*印は本発明の範囲外の試料を示す。

[0064]

* * [表4]

| 試料 No. | 相対 密度 (%) | 熱 伝導率 (W/mK) | Rmax (μm) | 抗折 強度 (MPa) | 破壊靱性 (MPa・m ^{1/2}) | Si ₃ N ₄ 以外 結晶相 | 収縮率 (%) | 熱サイクル 試験 (回) |
|-----------|-----------------|--------------------|--------------|-------------------|---------------------------------|--|------------|--------------------|
| * 1 | 95 | 55 | 15 | 490 | 6.2 | YAM | 14 | 3000以上 |
| 2 | 98 | 60 | 10 | 580 | 6.3 | YAM | 19 | 2200 |
| 3 | 100 | 75 | 7 | 650 | 7.3 | YAM | 20 | 2500 |
| 4 | 100 | 70 | 10 | 620 | 7.0 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 5 | 100 | 65 | 12 | 570 | 6.5 | YAM | 20 | 3000以上 |
| * 6 | 100 | 50 | 14 | 530 | 6.0 | YAM | 20 | 1800 |
| 7 | 100 | 70 | 7 | 650 | 7.1 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 8 | 100 | 65 | 6 | 660 | 7.0 | YAM | 20 | 3000以上 |
| * 9 | 100 | 50 | 8 | 680 | 6.5 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 10 | 100 | 70 | 6 | 640 | 6.8 | アモライト | 20 | 3000以上 |
| 11 | 100 | 73 | 7 | 700 | 7.3 | アモライト | 20 | 3000以上 |
| 12 | 100 | 75 | 8 | 640 | 7.2 | ダイアグレート | 20 | 3000以上 |
| 13 | 100 | 70 | 6 | 600 | 7.0 | ダイアグレート | 20 | 3000以上 |
| 14 | 100 | 63 | 8 | 590 | 7.3 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 15 | 100 | 65 | 7 | 600 | 7.2 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 16 | 100 | 65 | 9 | 600 | 7.1 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 17 | 100 | 65 | 6 | 620 | 7.2 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 18 | 100 | 68 | 8 | 630 | 7.3 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 19 | 100 | 70 | 9 | 630 | 7.3 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 20 | 100 | 70 | 7 | 630 | 7.0 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 21 | 100 | 73 | 8 | 650 | 7.4 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 22 | 100 | 75 | 6 | 650 | 7.3 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 23 | 100 | 75 | 4 | 670 | 7.5 | YAM | 20 | 3000以上 |

*印は本発明の範囲外の試料を示す。

[0065]

[表5]

17

18

| 試料 No. | 相対 密度 (%) | 熱 伝導率 (W/mK) | Rmax (μ m) | 抗折 強度 (MPa) | 破壊靱性 ($\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$) | Si ₃ N ₄ 以外 結晶相 | 収縮率 (%) | 熱サイクル 試験 (回) |
|-----------|-----------------|--------------------|--------------------|-------------------|---|--|------------|--------------------|
| 24 | 100 | 75 | 5 | 660 | 7.4 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 25 | 100 | 73 | 6 | 640 | 7.3 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 26 | 100 | 73 | 4 | 650 | 7.4 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 27 | 100 | 70 | 8 | 620 | 7.1 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 28 | 100 | 70 | 6 | 630 | 7.2 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 29 | 100 | 70 | 6 | 640 | 7.3 | YAM | 16 | 3000以上 |
| 30 | 100 | 75 | 7 | 640 | 7.4 | YAM | 10 | 3000以上 |
| 31 | 100 | 70 | 6 | 620 | 7.2 | YAM | 7 | 3000以上 |
| 32 | 98 | 65 | 8 | 580 | 7.0 | YAM | 5 | 3000以上 |
| 33 | 95 | 50 | 8 | 400 | 6.1 | YAM | 14 | 1600 |
| 34 | 98 | 60 | 8 | 500 | 6.3 | YAM | 20 | 2300 |
| 35 | 100 | 63 | 8 | 550 | 6.5 | YAM | 20 | 2800 |
| 36 | 100 | 70 | 9 | 600 | 7.1 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 37 | 100 | 78 | 8 | 620 | 7.3 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 38 | 92 | 45 | 16 | 430 | 6.0 | YAM | 20 | — |
| 39 | 90 | 40 | 17 | 390 | 5.8 | YAM | 20 | — |
| 40 | 90 | 40 | 20 | 400 | 5.9 | YAM | 20 | — |
| 41 | 100 | 75 | 7 | 650 | 7.8 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 42 | 100 | 75 | 7 | 660 | 8.2 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 43 | 100 | 75 | 8 | 700 | 8.5 | YAM | 20 | 3000以上 |

*印は本発明の範囲外の試料を示す。

【0066】

20【表6】

| 試料 No. | 相対 密度 (%) | 熱 伝導率 (W/mK) | Rmax (μ m) | 抗折 強度 (MPa) | 破壊靱性 ($\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$) | Si ₃ N ₄ 以外 結晶相 | 収縮率 (%) | 熱サイクル 試験 (回) |
|-----------|-----------------|--------------------|--------------------|-------------------|---|--|------------|--------------------|
| 44 | 100 | 75 | 9 | 720 | 9.0 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 45 | 100 | 75 | 8 | 750 | 10.0 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 46 | 100 | 70 | 7 | 730 | 9.5 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 47 | 100 | 73 | 9 | 750 | 10.2 | YAM | 20 | 3000以上 |
| 48 | 100 | 70 | 22 | 400 | 5.3 | メタライズ | 20 | — |
| 49 | 100 | 72 | 23 | 380 | 5.0 | メタライズ | 20 | — |
| 50 | 100 | 72 | 20 | 410 | 5.2 | メタライズ | 20 | — |

*印は本発明の範囲外の試料を示す。

【0067】表1乃至表6の結果によれば、周期律表第3a族元素酸化物量が2モル%よりも少ない試料No.1では、緻密化不足となり、熱伝導性および機械的特性も低下した。また、周期律表第3a族元素酸化物量が10モル%を超える試料No.6では、熱伝導率が大幅に低下した。また、焼結体中のアルミニウム含有量が0.5重量%を超える試料No.9では、熱伝導性が大幅に低下した。

【0068】さらに、焼成条件において、第1および第2の焼成条件のいずれかを行わないか、第2焼成工程時の温度が1800℃よりも低い試料No.38、39、40は、熱伝導率、靱性、強度のいずれかが満足すべきものではなかった。

【0069】また、SiOガス中での焼成あるいは熱処理を全く施さなかった試料No.48～50では、焼き肌面および酸化膜面の表面粗さが粗く、しかも破壊靱性値が低く、熱サイクル試験で満足すべき耐久性が得られなかった。

【0070】これらの比較例に対して、本発明の窒化ケイ素質基板は、相対密度98%以上、熱伝導率60W/

m・K以上、抗折強度500MPa以上、靱性6MPa・m^{1/2}以上を示すとともに、熱サイクル試験においても2000回以上の優れた耐久性を示した。特に、酸化処理を施した試料No.44～47では、破壊靱性値は10MPa・m^{1/2}以上が達成された。

【0071】

【発明の効果】以上詳述した通り、本発明の窒化ケイ素質基板は、高熱伝導性、高靱性、高強度を具備するとともに、焼き肌面あるいは酸化膜面において適度の表面粗さを有することから、メタライズ層を形成する前の研磨工程を必要とせず、しかもメタライズ層、さらにはメタライズ層を介して高熱膨張の金属部材を接合した場合において、熱サイクルが印加された場合においても、基板にクラックや接合不良等が発生することがなく、優れた耐久性を具備することができる。これにより、その表面に電子部品が搭載され、自動車用などの過酷な使用条件下でも使用可能な高信頼性で、且つ安価な窒化ケイ素質基板を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の窒化ケイ素質基板の使用形態を説明す

るための概略図である。

【図2】本発明の窒化ケイ素質基板の他の使用形態を説明するための概略図である。

【符号の説明】

1 窒化ケイ素質基板

2, 8 接合用メタライズ層

* 3 金属箔

4 電子部品

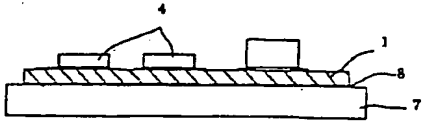
5 回路基板

6 接合剤

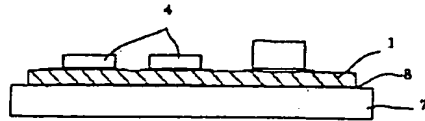
7 放熱体

*

【図1】



【図2】



127